

НЕЛИНЕЙНЫЙ МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ

Л.Н.Булаевский, В.М.Файн

В этой работе мы покажем, что в сегнетоэлектрике—антиферромагнетике с неэквивалентными магнитными ионами возможна квадратичная зависимость спонтанной поляризации от намагниченности подрешеток. Мы укажем также физические эффекты, к которым приводит эта зависимость.

В [1] показано, что в антиферромагнетиках без центра симметрии между магнитными ионами матричные элементы дипольного момента для спин-волновых состояний отличны от нуля, если учесть электронные переходы в возбужденные ионные состояния вместе с кулоновским обменом электронов неэквивалентных ионов. Эти матричные элементы дипольного момента, ответственные за двухмагннное поглощение [2], определяются эффективным оператором дипольного момента

$$D_{\text{эфф}} = \sum_{m, m'} d_{m, m'} (S_m S_{m'}). \quad (1)$$

Отметим, что к зависимости (1) приводит не только механизм, рассмотренный в [1], но и косвенный обмен между неэквивалентными ионами, ответственный за антиферромагнитное упорядочение [3]. Гамильтониан, учитывающий кулоновское отталкивание электронов незаполненной оболочки и косвенный обмен, имеет вид:

$$H = H_0 + H'; \quad H_0 = 1/2 \sum_{m_1 m_2} J_{m_1 m_2} n_{m_1} n_{m_2},$$

$$H' = \sum_{m_1 m_2 \sigma} \beta_{m_1 m_2} a_{m_1 \sigma}^+ a_{m_2 \sigma}; \quad n_m = \sum_{\sigma} a_{m \sigma}^+ a_{m \sigma}, \quad (2)$$

где $J_{m_1 m_2}$ — кулоновское отталкивание электронов на узлах m_1 и m_2 , $\beta_{m m'}$ — параметр косвенного обмена между ионами m, m' и предполагается, что в незаполненной оболочке магнитного иона имеется один электрон. В этом же представлении локализованных электронов оператор дипольного момента

$$D = \sum_{m_1 m_2 \sigma} X_{m_1 m_2} (a_{m_1 \sigma}^+ a_{m_2 \sigma} - a_{m_1 m_2}),$$

$$X_{m_1 m_2} = \int w_{m_1}(r) r w_{m_1}(r) d^3 r, \quad (3)$$

где $w_m(r)$ — функция Ванье на узле m . Из (2) и (3) в первом и втором порядке теории возмущений по косвенному обмену H' получаем эффективный оператор дипольного момента

$$D_{\text{эфф}} = P(1 - H')/(1/H_0) D (1 - (1/H_0)H') P = \sum_{m, m'} d_{mm'} (S_m S_{m'} - 1/4), \quad (4)$$

где P – оператор проектирования на вырожденные состояния с одним электроном на центре и

$$d_{mm'} = 2X_{mm'} \beta_{mm'} \frac{1}{u_{mm'}} - \frac{1}{u_{m'm}} - (m - m') e \beta_{mm'}^2 \left[\frac{1}{u_{mm'}^2} - \frac{1}{u_{m'm}^2} \right], \quad u_{mm'} = l_{mm} - l_{m'm}. \quad (5)$$

Для неэквивалентных ионов m и m' величина $X_{mm'} \neq 0$,

$$u_{mm'} \neq u_{m'm} \quad \text{и} \quad d_{mm'} \sim e |m - m'| (\beta/u)^2,$$

т.е. вклад косвенного обмена в параметры $d_{mm'}$ составляет $10^{-2} + 10^{-3}$ атомного дипольного момента d_0 .

Из (1) следует, что в антиферромагнетиках, симметрия которых допускает вектор (сегнетоэлектрики ниже T_c), возможно существование макроскопической поляризации P , зависящей от магнитного состояния системы. Действительно,

$$P = P_0 + \frac{1}{V} \langle D_{\text{эфф}} \rangle = P_0 + \frac{1}{V} \sum_{m, m'} d_{mm'} \langle S_m S_{m'} \rangle, \quad (6)$$

где P_0 – часть поляризации, не зависящая от спинов, V – объем.

Ниже точки Нееля T_N в приближении молекулярного поля

$$P = P_0 + D(S_1 S_2); \quad D = \frac{1}{V} \sum_{m, m'} d_{mm'}, \quad (7)$$

где $S_{1,2}$ – средний спин в узлах подрешетки 1, 2, и направления P_0 и D совпадают, если симметрия допускает вектор лишь одного направления.

Сосуществование сегнетоэлектрической и антиферромагнитной фазы обнаружено, например, в борацидах [4, 5]. В них, по-видимому, возможно наблюдение следующих эффектов, основанных на зависимости поляризации от спинов.

Из (6) следует, что в кристаллах с $T_N < T_c$ (по-видимому, в никельхлористом борациде) в области T_N поляризация будет меняться с температурой также, как магнитная энергия. В модели фазовых переходов второго рода Ландау изменение поляризации с температурой будет линейным с коэффициентом

$$D/T_N, \quad D \sim d_0 N (\beta/u)^2 \sim (10^{-2} + 10^{-3}) d_0 N,$$

N – плотность магнитных ионов.

Зависимость (1) приводит к эффекту удвоения частоты в сегнето-электрике-антиферромагнетике. Действительно, при возбуждении антиферромагнитного резонанса переменным магнитным полем

$$h e^{i\omega t} + h^* e^{-i\omega t}$$

в поляризации появляются члены, пропорциональные квадрату напряженности переменного поля

$$\begin{aligned} \Delta P = & \frac{1}{2} D [(S_{1x} + S_{2x})^2 + (S_{1y} + S_{2y})^2] = \\ = & 2D\gamma^2 \omega_a^2 \frac{h_+ h_-^*}{|A(\omega)|^2} + \frac{h_+ h_-^*}{|A(-\omega)|^2} + \frac{(h_+)^2 e^{2i\omega t}}{A(\omega) A^*(-\omega)} + \\ + & \frac{(h_-^*)^2 e^{-2i\omega t}}{A(-\omega) A^*(\omega)}, \quad A(\omega) = (\omega_a + \omega_a)^2 - \omega_a^2 - (\omega + \omega_H - i\omega_r)^2, \quad (8) \end{aligned}$$

где $h_{\pm} = h_x \pm i h_y$, ω_a , ω_a , ω_H — частоты, соответствующие обменно-му полю, полю анизотропии и постоянному магнитному полю соответственно, ω_r — частота релаксации, γ — гиромагнитное отношение. Из (8) видно, что ΔP содержит члены, не зависящие от времени и члены, осциллирующие с удвоенной частотой 2ω , приводящие к магнитоэлектрическому удвоению частоты. Оценка эффекта вне резонанса дает $\Delta P = \gamma^2 D |h|^2 / \omega_a^2$.

Отметим также, что в сегнетоэлектриках-антиферромагнетиках возможно двухмагнонное поглощение на удвоенной частоте антиферромагнитного резонанса, т.е. рождение магновов с $k = 0$. Во фторидах переходных элементов группы железа при двухмагнонном поглощении появляются магновы с квазимпульсом k , $-k \neq 0$, так как группа симметрии кристалла содержит инверсию и $\sum_{m, mm} d = 0$.

Институт химической физики
Академии наук СССР

Поступило в редакцию
27 июня 1968 г.

Литература

- [1] Y. Tanabe, T. Morija, S. Sugano. Phys. Rev., Lett., 15, 1023, 1965.
- [2] T. Morija. J. Phys. Soc. Japan, 21, 926, 1966.
- [3] P. W. Anderson. Phys. Rev., 115, 2, 1959.
- [4] E. Ascher, H. Rieder, H. Schmid, H. Stössel. J. Appl. Phys., 37, 1404, 1966.
- [5] H. Schmid, H. Rieder, E. Ascher. Solid State Comm., 3, 327, 1965.